

# Состояние и перспективные направления развития методов контроля РАО, упакованных в герметичные контейнеры

Рассмотрено современное состояние неразрушающего контроля радиоактивных отходов (РАО), упакованных в герметичные контейнеры, по энергетическому спектру выходящего из контейнера гамма-излучения. Проведен краткий анализ применяемых в существующих установках контроля и паспортизации контейнеров с РАО методов проведения нуклидного анализа РАО с определением удельных активностей содержащихся в них радионуклидов, показаны их недостатки. Предложены более эффективные методы характеристики РАО. Рассмотрены проблемы контроля труднодетектируемых радионуклидов (альфа- и бета-излучающих) и недостатки рекомендуемого МАГАТЭ для их контроля метода «масштабирующих коэффициентов». Предлагаются более перспективные методы, являющиеся дальнейшим развитием «метода нуклидного вектора». Обоснован перечень используемых при их реализации «реперных» гамма-излучающих нуклидов.

## **Ключевые слова:**

*радиоактивные отходы, неразрушающий контроль, гамма-излучение, спектрометрия.*

**В.Э.Дрейзин<sup>1</sup>, А.А.Свиридов<sup>1</sup>,  
В.В.Варганов<sup>1</sup>, Д.И.Логвинов<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> ФГОУ ВО Юго-Западный государственный университет, г. Курск

<sup>2</sup> ООО «НЕОРАДТЕХ» г. Москва

Обеспечение безопасности при обращении с радиоактивными отходами (РАО), образующимися на атомных электростанциях и других предприятиях атомной отрасли, является одной из главных проблем ее дальнейшего развития. В мире накоплено огромное количество радиоактивных отходов, большинство из которых хранится во временных приповерхностных хранилищах. В настоящий момент эта задача становится особенно актуальной, поскольку наступает время вывода из эксплуатации большого числа действующих ядерных реакторов (по данным МАГАТЭ это более 65 реакторов АЭС и 260 исследовательских реакторов), рекультивация территорий которых приведет к резкому увеличению количества радиоак-

тивных отходов. Поэтому во всем мире большое внимание уделяют совершенствованию системы контроля и учета РАО.

В соответствии с рекомендациями МАГАТЭ, МКРЗ и принятыми в РФ нормами и правилами обеспечения радиационной безопасности при обращении с РАО, полностью гармонизированными с рекомендациями МАГАТЭ [1-5], контроль нуклидного состава и удельной активности РАО с документированием измеренных характеристик РАО должен осуществляться на всех этапах их сбора, кондиционирования, упаковки, хранения и транспортировки, включая контроль и паспортизацию подготовленных к хранению (захоронению) контейнеров с РАО. При этом современное состояние характеристики РАО, упакованных в герметичные контейнеры, значительно хуже, чем при проведении лабораторных исследований проб РАО, для чего используются хорошо апробированные методы гамма-спектрометрии высокого разрешения, бета- и альфа-спектрометрии, а также радиохимические методы анализа, опыт использования которых имеется на всех предприятиях атомной отрасли. Проблема характеристики РАО, упакованных в герметизированные контей-

неры, далека от адекватного решения и в теоретическом, и в методическом, и в практическом плане.

Основная теоретическая сложность состоит в том, что альфа- и бета-излучения полностью поглощаются во вмещающей среде и оболочке контейнера и наружу не выходят, а гамма-излучение, проходя через вмещающую среду и стенку контейнера, не только ослабляется, но и меняет свой энергетический спектр. За счет эффектов рассеяния и поглощения гамма-квантов резко возрастает уровень непрерывной составляющей по сравнению с фотопиками от каждой гамма-линии и, при этом, существенно изменяется форма комптон-распределения (краевой комптоновский пик сглаживается, но зато существенно растет пик обратного рассеяния). При этом почти полностью исчезают фотопики от гамма-линий с энергиями менее 150–200 кэВ. Все это исключает возможность использования традиционных методик определения нуклидного состава и удельных активностей отдельных радионуклидов, применяемых для счетных образцов, приготовленных из проб РАО с применением гамма-спектрометров высокого разрешения с германиевыми детекторами, когда самопоглощением и искажением спектра в самом

образце можно пренебречь, что позволяет определять удельные активности нуклидов по площади их фотопиков на спектрограмме.

#### **Анализ существующих методов нуклидного анализа РАО по гамма-спектру выходящего из контейнера излучения**

В [6] был проведен анализ существующих подходов к решению этой проблемы и показаны их недостатки. Наиболее корректным с математической точки зрения является матричный метод. Однако его практическое применение наталкивается на весьма серьезные ограничения. Для его реализации должны быть определены «эталонные» аппаратные спектры каждого радионуклида. Эталонный спектр радионуклида – это виртуальный аппаратный спектр РАО в данной конкретной упаковке и при той же геометрии измерений и тех же условиях, что и реальный, но для случая, когда в РАО содержится лишь один конкретный нуклид, равномерно распределенный в той же вмещающей среде. Получить их экспериментальным путем нереально (для этого пришлось бы искусственно готовить контейнеры, где в той же вмещающей среде равномерно распределен лишь один радионуклид). Поэто-

му единственно возможным является расчетный путь с использованием моделирующих программ, основанных на методе Монте-Карло. Но это далеко не единственная сложность. В современных гамма-спектрометрах число каналов может составлять от 1024 до 4096. Такой же будет размерность информационных матриц для каждого идентифицируемого нуклида. Матричный метод использует аппарат линейной алгебры, при котором число уравнений в системе равно числу каналов спектрометра, а неизвестными являются удельные активности идентифицируемых нуклидов. Их число во много раз меньше, поэтому система уравнений получается переопределенной и решается методом наименьших квадратов, который требует обращения информационных матриц. При столь большой мерности пространства факторных признаков (ими являются накопленные за время измерения количества импульсов в каналах спектрометра) неизбежна достаточно тесная корреляция значений соседних каналов (и чем слабее разрешение детектора, тем эта корреляция будет теснее). Это приводит к плохой обусловленности системы уравнений, в результате получить ее решение либо вообще невозможно (матрица не обращается из-за деления

на ноль), либо решение становится неустойчивым (небольшим вариациям аргументов соответствуют большие отклонения искомым величин). При применении для контроля контейнеров с РАО сцинтилляционных спектрометров с энергетическим разрешением даже в лучшем случае 3–4% (по линии 662 кэВ Cs-137) использовать в качестве факторных признаков показания всех каналов спектрометра становится не только нецелесообразным, но и вредным. Учитывая стохастическую неопределенность показаний каналов и в измеренном спектре при ограниченном времени его набора, и в расчетных эталонных спектрах нуклидов из-за ничтожной доли зарегистрированных детектором гамма-квантов от числа испущенных содержимым контейнера, показания соседних каналов необходимо усреднять, чтобы уменьшить размерность информационных матриц до разумных пределов (несколько десятков) и одновременно ослабить стохастичность и расчетных, и измеряемых спектров. Однако опасность получения неустойчивого решения этим не устраняется. Напротив, при повышении гладкости спектра вероятность тесной корреляции оставшихся факторных признаков повышается, что ухудшает устойчивость

решения. Это дополнительно ограничивает применимость матричного метода. Поэтому в существующих установках контроля и паспортизации упаковок с РАО применяют упрощенные методы нуклидного анализа.

### **Существующие аппаратно-программные комплексы контроля и паспортизации упаковок с РАО**

В РФ промышленные комплексы контроля и паспортизации РАО, упакованных в контейнеры, не выпускаются. Имеются лишь экспериментальные образцы таких комплексов, разрабатываемые различными компаниями. В них используются преимущественно сцинтилляционные спектрометры с детекторами NaI(Tl) или LaBr<sub>3</sub>(Ce). Для расшифровки измеренных гамма-спектров выходящего из контейнера излучения с целью проведения нуклидного анализа РАО применяются различные упрощенные методы, базирующиеся либо на разделении всего энергетического диапазона измеренного спектра на несколько интервалов с определением накопленного количества импульсов на каждом из них и сопоставление их со спектрами излучения наиболее вероятных радионуклидов, либо на замещении распределенной излучающей среды эквивалентным

точечным источником с определением его координат и учетом поглощения излучения вмещающей средой и стенкой контейнера. Подробнее эти методы и анализ их недостатков изложены в [6].

Мировым лидером по производству и поставке различных приборов и систем радиационного контроля, включая и промышленные установки неразрушающего контроля упаковок с РАО, является компания *Mirion Technologies*, в которую не так давно вошла широко известная компания *Canberra*. Она имеет производственные подразделения и торговые представительства во многих странах мира, включая и РФ. Однако представленная и на русскоязычном сайте компании [www.canberra.ru](http://www.canberra.ru), и на англоязычном сайте [www.mirion.com](http://www.mirion.com) информация о продукции компании носит, в основном, рекламный характер. Тем не менее, некоторые важные сведения о номенклатуре, составе, программном обеспечении и (в меньшей степени) об используемых методах нуклидного анализа РАО извлечь из представленных материалов можно.

Для контроля низкоактивных РАО, упакованных в стальные 200-литровые бочки, предназначены системы серии Q2 (*Qualitative & Quantitative*), предназна-

ченные для качественного и количественного анализа РАО (модель *WM2100*) или автоматические системы AQ2 (модель *WM2111*). Они оснащаются гамма-спектрометрами с NaI-детекторами большого размера и/или несколькими германиевыми детекторами со свинцовой защитой. Программное обеспечение *NDA2000* осуществляет сбор, анализ и архивацию данных, включая калибровку с коррекцией самопоглощения в зависимости от плотности вмещающей среды. Кроме того, оно может рассчитывать корреляционные коэффициенты для альфа-и бета-излучающих нуклидов по отношению к основным гамма-излучателям. Германиевые детекторы охлаждаются либо жидким азотом, либо электроохладителем (в последнем случае выход на рабочую температуру требует от 8 до 12 часов). Для проведения нуклидного анализа разработаны программные продукты *MGA*, *MGAU*, *FRAM*. Они применяются для определения содержания изотопов плутония и урана на основании гамма-спектрометрических измерений и используют передовые алгоритмы аппроксимации пиков и разделения мультиплетов для повышения точности измерения сложных смесей изотопов и в стандартном режиме не требуют

калибровки по эффективности относительно плотности матрицы (вмещающей среды РАО), типа матрицы или характеристик упаковки.

*Последнее означает, что сначала результаты спектрометрических измерений обрабатываются программой NDA 2000, которая определяет ослабление гамма-излучения при прохождении через вмещающую среду, но не учитывает деформацию спектра, а значит, при дальнейшем определении удельных активностей отдельных нуклидов программами MGA, MGAU, FRAM доля гамма-квантов в фотопиках по отношению к суммарному количеству зарегистрированных гамма-квантов сохраняется той же, что для исходного спектра излучения данного изотопа. Это неминуемо приводит к занижению значений определяемых удельных активностей идентифицируемых нуклидов.*

Для РАО, упакованных в стальные 200-литровые бочки, эти погрешности будут не столь значительны, поскольку зона чувствительности детекторов (особенно снабженных толстостенными свинцовыми коллиматорами) невелика, а толщина стенок бочки всего 2 мм.

Для контроля РАО, упакованных в стальные контейнеры, предназначена модель

WM2500. Она оснащается одним или несколькими германиевыми детекторами со свинцовой защитой. Ее можно приспособить к различным размерам контейнеров с возможностью вертикальной и горизонтальной регулировки положения детекторов. В стандартной конфигурации используются стальные контейнеры В-25 (1×1×3 м). При этом время контроля составляет 30 минут, Коррекция ослабления в матрице материала выполняется путем калибровки по эффективности регистрации с учетом плотности РАО, определяемой путем взвешивания контейнера. Программное обеспечение для проведения гамма-спектрометрии и нуклидного анализа используется то же, что и для систем контроля бочек. С увеличением активности РАО, чтобы не превысить предельно допустимую скорость счета детекторов, предлагается увеличивать расстояние между детекторами и стенкой контейнера.

*Последнее неминуемо приведет к дополнительному искажению формы спектра за счет возрастания доли рассеянного излучения. Таким образом, при контроле даже стальных контейнеров с РАО погрешности количественного нуклидного анализа существенно возрастут. Поскольку в РФ преиму-*

*щественно используются железобетонные контейнеры различных типов с толщиной стенок от 110 до 220 мм, то для них игнорирование искажений спектра выходящего из контейнера излучения будет приводить к многократным ошибкам в определении удельных активностей контролируемых нуклидов. Поэтому применять для их контроля системы контроля, предлагаемые компанией Mirion Technologies (Canberra), нельзя. Очевидно именно поэтому контроль РАО, упакованных в железобетонные контейнеры, в материалах компании даже не упоминается.*

### **Предлагаемые методы неразрушающего контроля контейнеров с РАО**

Авторами уже ряд лет разрабатываются два альтернативных метода: метод последовательных вычитаний и метод, использующий заранее обученную нейронную сеть. Оба они, как и матричный метод, базируются на расчетах «эталонных» аппаратурных гамма-спектров идентифицируемых радионуклидов конкретно для каждого типа упаковки.

Метод последовательных вычитаний состоит в выделении из анализируемого сложного спектра выходящего из контейнера гамма-излу-

чения наиболее энергичного фотопика, определении его центроиды (энергии, соответствующей максимуму спектральной плотности) и площади. По энергии его центроиды определяется нуклид, которому принадлежит данный фотопик, а по площади этого фотопика (количеству зарегистрированных гамма-квантов в нем) с использованием «эталонного» спектра данного радионуклида восстанавливается его полный аппаратурный спектр (включая фотопики от менее энергичных гамма-линий и непрерывное комптоновское распределение). После восстановления полного аппаратурного спектра данного нуклида рассчитывается площадь под его кривой и по отношению этой площади к площади под кривой всего суммарного измеренного спектра определяется относительная парциальная активность данного нуклида (нормированная относительно активности всей смеси нуклидов). После этого вычитают аппаратурный спектр данного нуклида из аппаратурного спектра всей смеси и аналогичным образом проводят анализ остаточного спектра, вновь выделяя наиболее энергичный из оставшихся фотопиков. Процедура продолжается, пока не будут выделены все фотопики и соответствующие им нуклиды,

содержащиеся в исходной смеси. Но при этом определяются лишь относительные значения удельных активностей идентифицируемых нуклидов по отношению к суммарной активности всей смеси.

Расчет абсолютных значений удельных активностей отдельных нуклидов и суммарной удельной активности РАО проводится с учетом удельной квантовой эмиссии излучающей среды (число гамма-квантов, излучаемых за 1 с в 1 мм<sup>3</sup> излучающей среды), задаваемой при моделировании аппаратурных спектров нуклидов. Это дает возможность рассчитать соответствующие абсолютные значения удельных активностей каждого нуклида. Подробное изложение этого метода содержится в [6].

Метод последовательных вычитаний привлекателен тем, что не требует решений каких-либо систем уравнений и предварительного обучения решающей системы на обширной обучающей выборке реализаций спектров при различных сочетаниях удельных активностей отдельных нуклидов. Но, необходимым условием его применения является возможность выделения на каждом шаге алгоритма неискаженных фотопиков от наиболее энергичных гамма-линий нуклидов. При

невысоком разрешении детектора это возможно лишь при небольшом числе нуклидов в смеси. Вторым необходимым условием его применения является наличие эталонных аппаратурных спектров для каждого идентифицируемого нуклида, расчет которых достаточно трудоемок.

В [7] приводится описание реализации метода последовательных вычитаний в программном обеспечении установки УСП-03АЕ контроля и паспортизации РАО, упакованных в железобетонные контейнеры типа НЗК с габаритными размерами 1650×1650×1375 мм и толщиной стенок, дна и крышки 150 мм, внедряемой АО «Интра» (Москва) на Нововоронежской АЭС. Этим методом удалось надежно идентифицировать и со среднеквадратической методической погрешностью менее 10% (лишь для нуклида Cs-134 она составила около 18%) определять удельную активность семи наиболее вероятных радионуклидов: Co-60, Fe-59, Mn-54, Co-58, Cs-134, Cs-137 и Cr-51. Установка предусматривала проведение контроля не с боковых сторон контейнера, а сверху и снизу.

Расчет методических погрешностей проводился путем моделирования представительной выборки смесей данных нуклидов методом

Монте-Карло с использованием библиотеки программ GEANT-4. Для каждого радионуклида в зоне чувствительности детектора запускалось 500 миллионов гамма-квантов с энергиями, соответствующими спектру излучения данного радионуклида, и равновероятными направлениями вылета, а далее прослеживалась «судьба» каждого из них либо до полного поглощения во вмещающей среде и стенках контейнера, либо до рассеяния в окружающую среду после вылета из контейнера, либо до попадания в сцинтиллятор детектора и взаимодействия с ним с получением сцинтилляций. Измеряемый аппаратурный спектр образуют именно гамма-кванты последней группы.

Эта же установка внедрялась филиалом «Северский» ФГУП «НО РАО» при инспекционном контроле контейнеров с РАО, извлекаемых из временных хранилищ. При этом использовались и железобетонные, и стальные контейнеры более 30 различных типов. Толщина стенок железобетонных контейнеров варьируется от 110 до 220 мм, стальных – 4 мм. Для каждого из них пришлось проводить отдельные расчеты эталонных спектров идентифицируемых нуклидов. Перечень идентифицируемых нуклидов тот же, и методиче-

ские погрешности контроля оказались примерно такими же (несколько ниже для более тонкостенных контейнеров и несколько выше для более толстостенных).

*Метод нейронных сетей* является более универсальным и применим к достаточно сложным спектрам, но требует создания обширной обучающей выборки реализаций спектров идентифицируемых смесей нуклидов при различных сочетаниях удельных активностей отдельных нуклидов. Таковую выборку можно получить только путем математического моделирования, и оно должно быть весьма точным. Фактически здесь, как и в матричном методе, ищутся многомерные статистические связи между измеренными значениями каналов суммарных спектров реализаций смесей нуклидов с удельными активностями каждого нуклида в этой смеси. Но если в матричном методе решение ищется в классе линейных функций, то в методе нейронных сетей – в классе нелинейных функций с многочисленными перекрестными связями между нейронами, что и обеспечивает высокую гибкость, эффективность и универсальность метода. Подробное его изложение также содержится в [6].

### **Проблема контроля «трудноизмеримых» радионуклидов**

В РФ перечень радиоактивных нуклидов, в отношении которых применяются меры государственного регулирования по защите окружающей среды, определен распоряжением Правительства РФ от 8 июля 2015 г. N 1316-р. Он хорошо согласуется с перечнем, рекомендуемым МАГАТЭ, и содержит 94 нуклида. Исключив из него 13 газообразных радиоактивных нуклидов, которые в твердых радиоактивных отходах отсутствуют, получаем 81 радионуклид. Помимо гамма-излучающих, сюда входят и «трудноизмеримые» нуклиды (бета- и альфа-излучатели, распад которых не сопровождается гамма-излучением или сопровождается излучением низкоэнергетических квантов рентгеновского диапазона, которые поглощаются вмещающей средой и стенкой контейнера). Но даже и без них в перечне остается несколько десятков радионуклидов. В [8] проведен анализ этого перечня с целью его минимизации с исключением нуклидов, активность которых за предельный срок промежуточного хранения РАО во временных хранилищах за 10 лет снизится до безопасного уровня (правда, следует учитывать,

что после образования РАО именно на эти быстро распадающиеся нуклиды приходится основная доля гамма-излучения, поэтому исключать их из перечня следует только после длительного срока хранения РАО). В итоге в перечне остается 41 радионуклид, удельная активность которых должна заноситься в паспорт радиационного контроля контейнеров с РАО при их инспекционном контроле.

В их число входят:

- гамма-излучающие: Na-22, Mn-54, Co-57, Co-58, Co-60, Zn-65, Ru-106, Ag-110m, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Ce-144, Eu-152, Eu-154, Eu-155 (всего 15);
- бета-излучающие: H-3, C-14, Cl-36, Fe-55, Ni-63, Sr-90, Tc-99, I-129; Pm-147 (всего 9);
- альфа-излучающие: Pb-210, Ra-226, Th-230, Th-232, U-232, U-233, U-234, U-235, U-236, Np-237, U-238, Pu-238, Pu-239+240, Pu-241, Am-241, Cm-243, Cm-244 (всего 17).

Поскольку для контроля контейнеров с РАО преимущественно используются сцинтилляционные гамма-спектрометры, у которых даже в лучшем случае (при использовании спектрометров с детекторами на основе бромида лантана) энергетическое разрешение на порядок хуже, чем у используемых

для исследования проб РАО спектрометров с ОЧГ-детекторами, то даже нуклидный анализ только 15 указанных гамма-излучающих нуклидов представляет сложную проблему. Для чистых бета- и альфа-излучателей неразрушающий контроль возможен лишь с использованием метода «нуклидного вектора», состоящего в поиске корреляционных связей удельных активностей этих нуклидов с удельными активностями сопутствующих «реперных» гамма-излучающих нуклидов. Простейший вариант этого метода, названный «методом масштабирующих коэффициентов» изложен в стандарте ISO 21238-2007 [9], а его обоснования и опыт использования в разных странах – в докладе международной комиссии экспертов [10]. Предпринятая в РФ попытка его реализации на примере Кольской АЭС изложена в МУ 1.2.1.16.0212-2014 [11]. Метод предполагает проведение нуклидного анализа трудноизмеримых бета- и альфа-излучающих нуклидов с использованием установленных заранее (путем анализа проб РАО) корреляционных линейных связей между удельными активностями этих нуклидов и удельными активностями «ключевых» легко измеряемых гамма-излучающих нуклидов Co-60

или Cs-137. Приведенный в этих МУ пример реализации этого метода на Кольской АЭС показывает, что даже для определенных категорий РАО неопределенности нахождения искомым удельных активностей бета-излучающих нуклидов (определялись всего 6 бета-излучающих нуклидов: C-14, Cl-34, Fe-55, Ni-63, Sr-90 и Tc-99, альфа-излучающие нуклиды не определялись) весьма высоки – диапазоны значений между нижней и верхней границами определения масштабирующих коэффициентов составляют от десятков до тысяч процентов. Это вполне объяснимо, поскольку используемый метод предполагает по одному «ключевому» гамма-излучающему нуклиду (в качестве которого используется либо Co-60, либо Cs-137) определять сразу несколько (в данном примере – шесть) бета-активных нуклидов по найденным на основании нуклидного анализа проб РАО масштабирующим коэффициентам. Трудно рассчитывать, что по одному информативному признаку (удельная активность «ключевого» нуклида) можно с достаточной достоверностью определять несколько результативных признаков (удельные активности трудноизмеримых нуклидов), основываясь только на линейных корреля-

циях между информативным и результативными признаками. Даже из приводимых в данном примере диаграмм разброса соотношений удельных активностей «ключевого» радионуклида с удельной активностью каждого из определяемых радионуклидов видно, что уже для РАО одной категории отклонения экспериментальных точек от линейной зависимости в большинстве случаев составляет не менее десятикратного.

В то же время есть все основания надеяться, что при увеличении числа одновременно используемых информативных признаков (удельных активностей различных гамма-излучающих нуклидов) и использовании более мощных и совершенных методов обработки информации можно существенно уменьшить неопределенность нахождения удельных активностей бета- и альфа-излучающих радионуклидов. Но для этого вместо примитивного метода масштабирующих коэффициентов необходимо использовать современные методы множественного статистического анализа. Наилучшими из таких методов для данной задачи являются множественный регрессионный анализ (МРА) и метод искусственных нейронных сетей (МИНС).

В первом случае (МРА) эти связи находятся в виде

линейных или нелинейных (полиномиальных) многочленов, связывающих каждый результативный признак с наиболее информативным подмножеством информативных (факторных) признаков, для чего используется матричный аппарат метода наименьших квадратов (МНК).

Во втором случае (МИНС) на входы предварительно обученной нейронной сети загружаются значения измеренных информативных признаков (измеренных значений удельных активностей реперных гамма-излучающих нуклидов) и непосредственно измеряемый спектр гамма-излучения РАО, а на ее выходах появляются вычисленные значения всех результативных признаков (удельные активности трудноизмеримых нуклидов).

Конечно, оба эти метода для получения достоверных результатов требуют представительной обучающей выборки, получаемой путем анализа проб РАО. Но в отличие от метода масштабирующих коэффициентов, при анализе проб РАО надо определять удельную активность не только двух «ключевых» гамма-излучающих нуклидов ( $^{60}\text{Co}$  и  $^{137}\text{Cs}$ ), а всех долгоживущих гамма-излучающих нуклидов с удельной активностью, составляющей не менее 5 процентов от суммарной удельной активности пробы.

Основной математической проблемой является разработка критериев и метода поиска оптимального подмножества информативных признаков, которые бы обеспечивали минимальную неопределенность решения при минимальном количестве используемых информативных признаков. Оптимальное подмножество информативных признаков должно отбираться из представленного ниже перечня реперных долгоживущих гамма-излучающих нуклидов по критериям значимости их вклада в суммарную активность упаковки с РАО. А сами математические процедуры сопутствующих вычислений проблемы не представляют, поскольку имеются весьма мощные и хорошо апробированные пакеты прикладных программ (такие как *MathCad*, *MatLab*, *Statistica*), позволяющие решать подобные задачи достаточно высокой мерности (до нескольких десятков в первичном информативном пространстве).

В перечень реперных гамма-излучающих радионуклидов, по которым должны определяться трудноизмеримые нуклиды, могут быть включены лишь долгоживущие нуклиды (с периодом полураспада свыше полугода) с энергиями гамма-линий выше 150–200 кэВ при усло-

вии выхода этих гамма-линий не менее 10%. С учетом этих ограничений остаются радионуклиды, характеристики которых приведены в табл. 1. Именно их удельные активности должны определяться в пробах РАО с использованием гамма-спектрометров высокого разрешения. Очевидно, что для различных категорий РАО не все из них будут присутствовать в пробах. Поэтому для каждой категории РАО этот список еще сократится (во всяком случае, должны быть исключены нуклиды, удельная активность которых в пробах РАО соответствующих категорий составляет менее 5% от суммарной активности пробы). По аналогичным критериям следует отбирать и значимые трудноизмеримые нуклиды при нуклидном анализе проб РАО. Таким образом, при анализе проб для каждой категории РАО должны быть установлены минимизированные по данным критериям перечни реперных гамма-излучающих нуклидов и трудноизмеримых бета- и альфа-излучающих нуклидов.

Таким образом, нуклидный анализ упакованных в контейнеры РАО должен проводиться в два этапа. На первом из них с использованием метода последовательных вычитаний или нейро-

**Табл.1.** Основные характеристики реперных гамма-излучающих радионуклидов.

Нуклид	Период полураспада	Энергия гамма-линий (выше 200 кэВ с выходом более 10%), кэВ (выход, %)
<sup>110m</sup> Ag	250 дней	1505 (13,6), 1384,3 (24,9), 937,5 (34,2), 884,7 (72,7), 764 (22,6), 706,7 (16,3), 657,8 (94,3)
<sup>152</sup> Eu	12,4 года	1408 (21), 1112 (13,6), 964 (14,6), 779 (13), 344 (26,6)
<sup>60</sup> Co	5,27 лет	1333 (100), 1173 (100)
<sup>154</sup> Eu	16 лет	1274,5 (35,5), 1004,8 (18), 916,3 (10,3), 873 (11,5), 723,3 (19,7)
<sup>22</sup> Na	2,6 года	1274,5 (100), 511 (181)
<sup>65</sup> Zn	244 дня	1115 (50,6)
<sup>106</sup> Ru	373 дня	912 (20,4)
<sup>94</sup> Nb	2,03·10 <sup>4</sup> лет	871,1(100), 702,6 (100)
<sup>54</sup> Mn	312 дней	834,8 (100)
<sup>134</sup> Cs	5,06 лет	795,9 (85,4), 604,7 (97,6), 569,3 (15,4)
<sup>137</sup> Cs	30,17 года	661,7 (85,1)

Примечание: В перечень гамма-линий данных радионуклидов не включены гамма-линии с энергией менее 200 кэВ и выходом менее 10%.

сетевого метода по спектру выходящего из контейнера гамма-излучения определяется удельная активность реперных гамма-излучающих нуклидов, значимо представленных в данной упаковке. А на втором этапе с использованием методов МРА или МИНС по полученным значениям удельных активностей реперных гамма-излучающих нуклидов и удельным активностям трудноизмеримых нуклидов, установленных при анализе проб РАО соответствующей категории, проводится нуклидный анализ трудноизмеримых нуклидов, представленных в данной упаковке.

### Заключение

1. Проведен краткий обзор существующих методов проведения нуклидного анализа

РАО, упакованных в герметичные контейнеры, по спектрам выходящего из них гамма-излучения. Показаны их недостатки. Для определения удельных активностей гамма-излучающих нуклидов предложены методы последовательных вычитаний и нейросетевой, основанные на предварительном расчете методом Монте-Карло «эталонных» аппаратурных спектров выходящего из контейнера гамма-излучения для каждого идентифицируемого радионуклида с учетом рассеяния и поглощения гамма-излучения во вмещающей среде и стенке контейнера.

2. Проведен анализ промышленных комплексов неразрушающего контроля упаковок с РАО, предлагаемых компанией *Mirion Technologies (Canberra)*.

Выявлены их основные недостатки, заключающиеся не только в дороговизне самих комплексов и их эксплуатации, но и в ущербности используемого метода нуклидного анализа РАО, не учитывающего искажения формы спектра гамма-излучения при прохождении через вмещающую среду и стенку контейнера, из-за чего определяемые значения удельных активностей нуклидов будут существенно занижены (особенно при использовании толстостенных железобетонных контейнеров). Видимо, именно по этой причине эти комплексы предназначены для РАО, упакованных в стальные бочки, где искажения формы спектра выходящего гамма-излучения не столь велики.

3. Кратко описаны результаты использования одного из предложенных методов – метода последовательных вычитаний в установке контроля и паспортизации контейнеров с РАО УССР-03АЕ, позволяющего достаточно точно определять удельные активности семи гамма-излучающих нуклидов. Такая установка

внедряется в настоящее время на двух предприятиях.

4. Рассмотрена проблема контроля трудноизмеримых бета- и альфа-излучающих нуклидов. Предложены пути ее решения с использованием более совершенного метода «нуклидного вектора», использующего группу «реперных» гамма-излучаю-

щих нуклидов вместо одного «ключевого» в используемом в настоящее время весьма примитивном и неэффективном методе масштабирующих коэффициентов, изложенным в ISO 21238-2007 и рекомендуемым в МУ 1.2.2.16.0212-2014. Рекомендован перечень реперных гамма-излучающих нуклидов.

### Литература

1. IAEA General Safety Requirements N GSR Part 3. Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2011.
2. СанПин 2.6.1.2523-09. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009).
3. СП 2.6.1.2612-10. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010).
4. СП 2.6.6.2572-2010. Обеспечение радиационной безопасности при обращении с промышленными отходами атомных станций, содержащими техногенные радионуклиды.
5. СП 2.6.6.1168-02. Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами (СПОРО-2002).
6. Дрейзин В.Э., Логвинов Д.И., Сиделева Н.В., Гримов А.А. Контроль и паспортизация контейнеров с РАО // АНРИ. 2015. N 2(81). С. 52-60.
7. Дрейзин В.Э., Логвинов Д.И., Гримов А.А., Шайбаков О.Р. Исследование точности нуклидного анализа РАО по выходящему из контейнера гамма-излучению с использованием метода последовательных вычитаний // АНРИ. 2018. N 4(95). С. 44-49.
8. Васильев А.В., Екидин А.А., Юсупов Р.И., Пудовкин А.В. Нормативно-методическое обеспечение для подтверждения критериев приемлемости радиоактивных отходов АЭС для захоронения // АНРИ. 2017. N 4(91). С. 23-30.
9. ISO 21238-2007. Nuclear energy – Nuclear fuel technology – Scaling factor method to determine the radioactivity of low- and intermediate-level radioactive waste packages generated at nuclear power plants, 2007.
10. IAEA Nuclear Energy Series NW-T-1.18. Determination and Use of Scaling Factors for Waste Characterization in NPP. IAEA, Vienna, Austria, 2009.
11. МУ 1.2.2.16.0212-2014. Определение характеристик радиоактивных отходов АЭС ОАО «Концерн Росэнергоатом».

## State and Prospective Directions of Development of Methods of Control of Raw Materials Packed in Sealed Containers

Dreyzin Valery<sup>1</sup>, Logvinov Dmitri<sup>2</sup>, Sviridov Artyem<sup>1</sup>, Varganov Vyacheslav<sup>1</sup>

<sup>1</sup> South-Western State University, Kursk, Russia; <sup>2</sup> "NEORADTECH", Moscow, Russia.

**Abstract.** The current state of non-destructive testing of radioactive waste (RW) packed in sealed containers by the energy spectrum of gamma radiation coming out of the container is considered. A brief analysis of the methods used in existing installations for the control and certification of containers with RW for conducting nuclide analysis of RW with the determination of the specific activities of the radionuclides contained in them is carried out, and their shortcomings are shown. More effective methods of RW characterization are proposed: the problems of controlling hard – to-detect radionuclides (alpha-and beta-emitting nuclides) and the disadvantages of the “scaling coefficients” method recommended by MAGATE for their control are considered. More promising methods are proposed, which are a further development of the “nuclide vector method”. The list of “reference” gamma-emitting nuclides used in their implementation is justified.

**Key words:** radioactive waste, non-destructive testing, gamma radiation, spectrometry.

В.Э.Дрейзин<sup>1</sup> (профессор, д.т.н., директор), А.А.Свиридов<sup>1</sup> (вед.инж.),

В.В.Варганов<sup>1</sup> (к.соц.н., директор), Д.И.Логвинов<sup>2</sup> (к.т.н., гл. спец.).

<sup>1</sup> ФГОУ ВО Юго-Западный государственный университет, г. Курск.

<sup>2</sup> ООО «НЕОРАДТЕХ», г. Москва.

Контакты: тел. (4712) 58-71-00; e-mail: Dreyzin\_ve@mail.ru.